

4/5/1

016128169      \*\*Image available\*\*  
WPI Acc No: 2004-286045/200427  
XRAM Acc No: C04-109750

Biodegradable composite material for molded product,  
contains plant natural fiber processed using surface treating agent,  
hydroxyl group of cellulose and biodegradable plastic having ester  
structure

Patent Assignee: HAMADA H (HAMA-I); KITAGAWA K (KITA-I); KYOTO-SHI (KYOT-N)  
; SUEHIRO SANGYO KK (SUEH-N)

Number of Countries: 001    Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 2003226821	A	20030815	JP 200230279	A	20020207	200427 B

Priority Applications (No Type Date): JP 200230279 A 20020207

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 2003226821	A		5	C08L-101/02	

Abstract (Basic): JP 2003226821 A

NOVELTY - The biodegradable composite material contains a plant natural fiber, a hydroxyl (-OH) group of cellulose and a biodegradable plastic having ester structure, which are blended together. The natural fiber is processed using a surface treating agent.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is included for the molded product obtained by injection molding biodegradable composite material to desired shape.

USE - For molded products.

ADVANTAGE - The composite material has high mechanical strength and is economical. Wettability of fiber surface is improved. Molded product of desired shape is obtained efficiently.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows the result of the tension test of the molded product. (Drawing includes non-English language text).

pp; 5 DwgNo 1/2

Title Terms: BIODEGRADABLE; COMPOSITE; MATERIAL; MOULD; PRODUCT; CONTAIN;  
PLANT; NATURAL; PROCESS; SURFACE; TREAT; AGENT; HYDROXYL; GROUP;  
CELLULOSE; BIODEGRADABLE; PLASTIC; ESTER; STRUCTURE

Derwent Class: A17; A87; D22; E13; F06

International Patent Class (Main): C08L-101/02

International Patent Class (Additional): C08J-005/06; C08L-001/02;  
C08L-067/02; C08L-101/16; D06M-015/41; D06M-101-04

File Segment: CPI



(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-226821 ✓

(P2003-226821A)

(43) 公開日 平成15年8月15日(2003.8.15) ✓

(51) Int.Cl.	識別記号	FI	テマコード(参考)
C 0 8 L 101/02	Z B P	C 0 8 L 101/02	Z B P 4 F 0 7 2
C 0 8 J 5/06	C F D	C 0 8 J 5/06	C F D 4 J 0 0 2
C 0 8 L 1/02	Z A B	C 0 8 L 1/02	Z A B 4 J 2 0 0
67/02		67/02	4 L 0 3 3
D 0 6 M 15/41		D 0 6 M 15/41	

審査請求 有 請求項の数10 OL (全 5 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2002-30279(P2002-30279)

(22) 出願日 平成14年2月7日(2002.2.7)

(71) 出願人 596053068

京都市

京都府京都市中京区寺町通御池上る上本能 ✓

寺前町488番地

(71) 出願人 592143530

末広産業株式会社

大阪府東大阪市下小阪2丁目14番16号

(71) 出願人 394024411

北川 和男

京都府京都市南区西九条唐橋町41番地

(74) 代理人 100084799

弁理士 篠田 貴

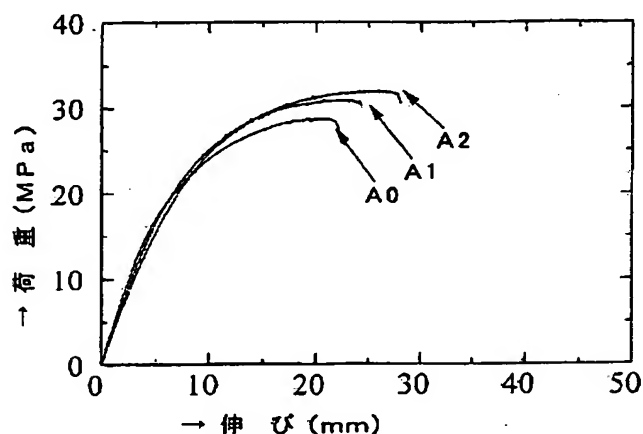
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 生分解性複合材料及び生分解性プラスチックの成形品

(57) 【要約】

【課題】 高い機械的強度を発揮できる生分解性複合材料を提供する。

【解決手段】 セルロースのOH基と反応する表面処理剤で処理した植物性天然繊維と、エステル構造を有する生分解性プラスチックとを均一に配合した。これにより、表面処理剤による化学反応で活性化したセルロースのOH基と生分解性プラスチックのエステル基との相互作用で繊維表面の濡れ性が向上し、界面の接着性が高くなって両者が十分に一体化するので、成形品の機械的強度が大で実用性の高い生分解性複合材料を得ることができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 セルロースのOH基と反応する表面処理剤で処理した植物性天然繊維と、エステル構造を有する生分解性プラスチックとを配合したことを特徴とする生分解性複合材料。

【請求項2】 生分解性プラスチックに対する植物性天然繊維の配合率が0.5～51wt%である請求項1記載の生分解性複合材料。

【請求項3】 植物性天然繊維が竹繊維である請求項1又は2に記載の生分解性複合材料。

【請求項4】 表面処理剤がグリオキサールである請求項1乃至3のいずれかに記載の生分解性複合材料。

【請求項5】 表面処理剤がトリメトキシメチルメラミンである請求項1乃至3のいずれかに記載の生分解性複合材料。

【請求項6】 生分解性プラスチックがポリブチレンサクシメートである請求項1乃至5のいずれかに記載の生分解性複合材料。

【請求項7】 竹繊維の直径が30～100 $\mu$ m、その長さが200～800 $\mu$ mである請求項3乃至6のいずれかに記載の生分解性複合材料。

【請求項8】 竹繊維が脱色あるいは着色処理されている請求項7記載の生分解性複合材料。

【請求項9】 竹繊維が脱臭あるいは着香処理されている請求項7記載の生分解性複合材料。

【請求項10】 請求項7乃至9のいずれかに記載の生分解性複合材料を使用し、射出成形法によって所望の形状に成形されたことを特徴とする生分解性プラスチックの成形品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、天然繊維と生分解性プラスチックの複合材料、特に強度の高い生分解性複合材料と、これを成形した成形品に関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、環境負荷の低減のために生分解性プラスチックが注目されている。しかし現在市販されている生分解性プラスチックは、いわゆるエンジニアリング・プラスチックと称されているものと比較して機械的強度がかなり低いため用途が限られている。このため強化材を入れて強度不足を補うことが試みられているが、この場合は強化材自体も生分解性でないと意味がないので、例えば竹、ジュート、ケナフ等の植物性天然繊維のほか、動物性の天然繊維などが使用されている。しかし、これらの天然繊維を混合しても期待されるような補強効果が得られていないのが現状である。

【0003】本発明者らはこの点に着目して研究を行い、天然繊維を単に混合しただけの複合材料の成形品では、応力が加わると母材のプラスチックと補強材の天然繊維とが分離してしまい、補強効果が発揮されないこと

を見出した。これは生分解性プラスチックと天然繊維の界面の接着性が不十分なことが一因であり、両者が十分に一体化された成形品になっていないためであると考えられる。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】この発明は上記の研究結果に基づき、生分解性プラスチックと天然繊維との接着性を高めることにより、高い機械的強度を発揮できる生分解性複合材料を提供できるようにすることを課題としてなされたものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】上記の課題を達成するために、この発明の生分解性複合材料は、セルロースのOH基と反応する表面処理剤で処理した植物性天然繊維と、エステル構造を有する生分解性プラスチックとを配合している。

【0006】上記の場合、生分解性プラスチックに対する植物性天然繊維の配合率は0.5～51wt%の範囲に選定される。

【0007】植物性天然繊維としては、竹、ジュート、ケナフ、ミツマタ等の植物性繊維が使用できるが、竹は成長が早くて生産性が高く、また国内でも十分な生産量があるので、特に適している材料である。

【0008】表面処理剤としては、界面活性剤として製紙工程で使用されているグリオキサールあるいはトリメトキシメチルメラミンが使用される。

【0009】また複合材料の母材となる生分解性プラスチックは、脂肪族ポリエステルや無水マレイン酸変性したポリエチレン、ポリプロピレンなど、エステル構造を有するものであればよく、例えばポリブチレンサクシメート等の市販されている公知の生分解性プラスチックを適宜使用できる。

【0010】この発明では直径が30～100 $\mu$ m、長さが200～800 $\mu$ mの範囲にある竹繊維が使用される。また、竹繊維は特有の色と臭いを持っているので、そのまま使用するほか、脱色あるいは着色したものや、脱臭あるいは着香したものを使用することができる。

【0011】このような竹繊維を使用した複合材料は射出成形法による成形を行うことができ、これにより所望の形状の成形品を得ることができる。

【0012】上述のように、この発明では表面処理剤で処理した植物性天然繊維とエステル構造を有する生分解性プラスチックとを混合しており、表面処理剤による化学反応で活性化したセルロースのOH基と生分解性プラスチックのエステル基との相互作用で繊維表面の濡れ性が向上し、界面の接着性が高くなって両者が十分に一体化する。従って、成形後の機械的強度の高い生分解性複合材料を得ることができるのである。

## 【0013】

【発明の実施の形態】以下、この発明の実施の形態を二

つの実施例により説明する。

【0014】第1の実施例においては、母材プラスチックとしてポリブチレンサクシメート（昭和高分子(株)製バイオノーレ#1020）を、補強材として粉碎処理で得られた平均直径約70 $\mu$ m、平均長さ約500 $\mu$ mの竹繊維（末広産業(株)製）を、表面処理剤としてグリオキサールをそれぞれ使用した。

【0015】まず、グリオキサール40wt%水溶液（和光純薬工業(株)製）を1wt%に希釈した処理液と、2wt%に希釈した処理液とを用意し、これらにそれぞれ竹繊維を室温で浸漬した後、室温で風乾した。この浸漬は、竹繊維に処理液が十分に浸透して濡れればよいので時間は適当でよく、浸漬以外の方法で処理してもよい。

【0016】こうして表面処理された2種類の竹繊維をそれぞれ10wt%の割合でポリブチレンサクシメートに配合し、2軸押出成形機を用いて温度135℃で均一に混練した後、インラインスクリュウ型射出成形機によりスクリュウ温度140℃でダンベル型に成形し、1wt%の処理液で処理した竹繊維を使用したサンプルA1と、2wt%の処理液で処理した竹繊維を使用したサンプルA2を得た。なお、上記の混練や射出時の温度はポリブチレンサクシメートの融点に対応して設定されたものであり、母材が異なる場合にはその母材に応じて設定されることになる。

【0017】図1はこれらのサンプルA1及びA2と、比較のため処理液で処理していない竹繊維を用いて同条件で成形したサンプルA0の引張試験の結果を示したものである。引張試験は、インストロン万能試験機を用い、クロスヘッドスピード5mm/分、スパン間距離115mmで実施した。

【0018】図1から明らかなように、サンプルA1及びA2は、サンプルA0と比較して機械的強度を示す伸びと荷重のいずれもが向上しており、しかもサンプルA2はサンプルA1よりも高い数値を示している。これらはこの発明による竹繊維の表面処理が有効であり、所期の目的が達成されていることを裏付けている。

【0019】第2の実施例においては、母材と竹繊維は第1の実施例と同様であるが、表面処理剤としてトリメトキシメチルメラミンを使用した。

【0020】まず、トリメトキシメチルメラミン80wt%水溶液（住友化学工業(株)製Sumitex Resin M-3）を1wt%に希釈した処理液と、2wt%に希釈した処理液とを用意し、これらにそれぞれ竹繊維を室温で浸漬した後、室温で風乾した。

【0021】こうして表面処理された2種類の竹繊維をそれぞれ10wt%の割合でポリブチレンサクシメートに配合し、第1の実施例と同条件で均一に混練してダンベル型に成形し、1wt%の処理液で処理したサンプルB1と、2wt%の処理液で処理したサンプルB2を得た。

【0022】図2はこれらのサンプルB1及びB2と、

前述のサンプルA0とを第1の実施例と同じ条件で引張試験を行った結果を示したものである。図2から明らかなように、サンプルB1及びB2はサンプルA0に対して伸びはほぼ変わらないものの、荷重は向上しており、サンプルB2はサンプルB1よりも高い数値を示している。この第2の実施例もこの発明による竹繊維の処理が有効であり、所期の目的が達成されていることを裏付けている。

【0023】以上の各サンプルの破断面を顕微鏡で確認したところ、サンプルA0では母材プラスチックと竹繊維の間に多くの隙間が生じているのに対して、サンプルA1及びA2並びにサンプルB1及びB2では隙間はほとんど生じておらず、母材と竹繊維とが一体化されていることが観察された。

【0024】上述の実施例では平均直径約70 $\mu$ m、平均長さ約500 $\mu$ mの竹繊維を用いているが、これは必要な強度が得られ、しかも射出成形に支障のない十分な流動性が保たれるように選定された数値である。実際の直径が30～100 $\mu$ m、長さが200～800 $\mu$ mの範囲の竹繊維であれば、平均値が上記と異なっても特に問題なく所望の形状の射出成形品を得ることができる。なお、成型性及び成形品強度等を考慮すると、竹繊維の直径が40～80 $\mu$ m、長さが400～600 $\mu$ mの範囲であることが望ましいが、成形方法や繊維の種類によっては繊維の直径や長さは上記の範囲以外のものであっても使用可能である。

【0025】図1では表面処理剤の濃度が高いサンプルの方が伸びと荷重が向上し、図2では表面処理剤の濃度が高い方が伸びが向上しており、表面処理剤の濃度が高いほど結果が良いことを示しているが、効果の得られる濃度の上限についてはまだ十分な確認はなされていない。

【0026】上述の実施例では竹繊維を10wt%の割合でポリブチレンサクシメートに配合しているが、植物性天然繊維の配合率は複合材料の用途や繊維の種類、生分解性プラスチックの種類などに応じて適宜選定すればよい。得られた成形品の機械的強度は天然繊維の配合率によって当然変化するが、配合率が0.5～51wt%の範囲であれば強度向上の効果があり、特に配合率が5～30wt%であれば大きな強度向上が期待できる。なお、上記の51wt%は規格上プラスチックとして認められる上限値であり、技術的には更に高い配合率も可能である。

【0027】また、母材プラスチックと表面処理剤は実施例のものに限定されるものではなく、性状が同等であれば他の材料を使うことができ、更に生分解性を損なわない範囲であれば、帯電防止剤、難燃剤、着色剤などの各種材料を適宜添加することができる。また、竹繊維は特有の色と臭いを持っているので、脱色あるいは着色処理したものや、脱臭あるいは着香処理したものを使用することができる。これらの処理は、例えば着色剤や芳香

剤の溶液に竹繊維を含浸するなど、適宜の手段によって実施することができる。

#### 【0028】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、この発明の生分解性複合材料は、セルロースのOH基と反応する表面処理剤で処理した植物性天然繊維と、エステル構造を有する生分解性プラスチックとを均一に配合したものである。従って、表面処理剤による化学反応で活性化したセルロースのOH基と生分解性プラスチックのエステル基との相互作用で繊維表面の濡れ性が向上し、界面の接着性が高くなって両者が十分に一体化するので、エンジニアリング・プラスチックとほぼ同等の機械的強度を有し、広い範囲の用途に使用可能で実用性の高い生分解性複合材料を得ることができる。

【0029】植物性天然繊維として竹繊維を用いたものでは、竹は成長が早くて生産性が高く、また国内でも十分な生産量があるので比較的入手が容易であり、機械的強度の高い生分解性複合材料を低コストで製造することが可能となる。

【0030】また表面処理剤として、製紙工程で一般に使用されているグリオキサルあるいはトリメトキシメチルメラミンを使用するので、入手は容易である。

【0031】また生分解性プラスチックとして市販されているポリブチレンサクシメートを使用するものでは、入手は容易である。

【0032】また直径が30～100 $\mu$ m、長さが200～800 $\mu$ mの竹繊維を使用することにより、必要な強度を確保しながら、射出成形法を適用して所望の形状の成形品を得ることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

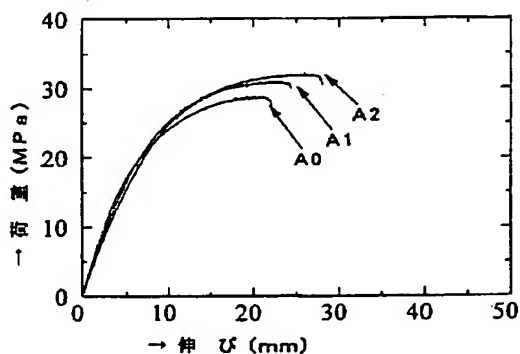
【図1】この発明の一実施形態における成形品の引張試験の結果を示す図である。

【図2】他の実施形態における成形品の引張試験の結果を示す図である。

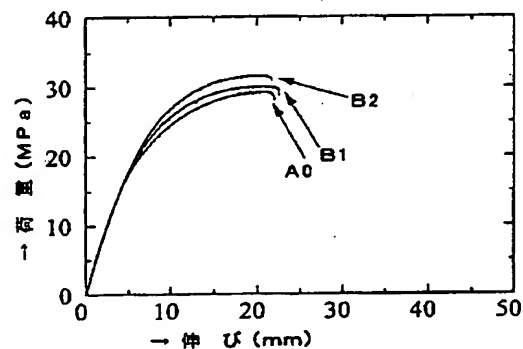
#### 【符号の説明】

A1、A2 一実施形態における成形品のサンプル  
B1、B2 他の実施形態における成形品のサンプル  
A0 従来技術による成形品のサンプル

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

// C08L 101/16

D06M 101:04

F I

テマコード (参考)

C08L 101/16

D06M 101:04

(71)出願人 599138870

濱田 泰以

滋賀県滋賀郡志賀町大字木戸1706-7

(72)発明者 北川 和男

京都市中京区室町通六角下ル鯉山町518-302

(72)発明者 濱田 泰以

滋賀県滋賀郡志賀町大字木戸1706-7

(72)発明者 今江 永治

大阪府東大阪市下小阪2丁目14番16号 末広産業株式会社内

Fターム(参考) 4F072 AA02 AA08 AB03 AB14 AB15  
AC06 AD39 AG04 AK15 AL01  
AL16  
4J002 AB012 CF031 FA042 FB082  
FD012  
4J200 AA06 AA16 BA20 BA38 CA00  
EA07 EA11 EA22  
4L033 AA02 AC11 AC12 AC15 CA34  
CA36